

УДК 621.039.7

ЛОКАЛИЗАЦИЯ ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАСС ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ» В БОРОСИЛИКАТНЫХ СТЕКЛАХ

Ольховик Ю. А. кандидат геол.-мин. наук, с.н.с, ГУ «Институт геохимии окружающей среды НАН Украины», yolkhovyk@ukr.net

*В работе рассмотрена текущая ситуация в объекте «Укрытие», которая характеризуется интенсивными процессами разрушения лавовых топливосодержащих масс вследствие альфа-распада изотопов плутония и минорных актинидов. Выполненный во Франции комплекс исследования свойств боросиликатных стекол, легированных короткоживущим $^{244}\text{PuO}_2$, показал высокую устойчивость этой матрицы к воздействию альфа-распада *in situ*. Вплоть до дозы $1,2 \cdot 10^{19}$ α -расп. $\cdot\text{г}^{-1}$ стекла сохраняют однородность, образования каких-либо новых фаз, микротрещин и газовых пузырьков не отмечено. Рассмотрена возможность преобразования лавовых топливосодержащих масс в боросиликатное стекло, близкое по составу к исследованным стеклам SON68, с использованием индукционного плавления в «холодном» тигле. Накопленная доза в стекле, сформированном на основе лавовых топливосодержащих масс, не превысит $1 \cdot 10^{18}$ α -расп. $\cdot\text{г}^{-1}$ за 100000 лет.*

Ключевые слова: лавовые топливосодержащие массы, захоронение, остекловывание, боросиликатное стекло, самооблучение, альфа-распад

Введение

Ядерную, радиационную и экологическую безопасность объекта «Укрытие» определяют в первую очередь лавообразные топливосодержащие материалы (ЛТСМ) ввиду того, что они содержат около 90 тонн облученного ядерного топлива, то есть около половины радионуклидов, накопленных в активной зоне энергоблока №4 Чернобыльской АЭС к моменту аварии.

Высокая скорость остывания лав в условиях значительных температурных градиентов и интенсивного газовыделения привели к наличию в матрице ЛТСМ внутренних напряжений, пористости и значительной неоднородности. Вследствие воздействия указанных факторов ЛТСМ представляют собой хрупкое пористое вещество, для которого характерны невысокая механическая прочность, эрозия поверхности (пылеобразование), высокая скорость выщелачивания урана и радионуклидов цезия, неустойчивость в условиях прямого контакта с водой. Наличие указанных свойств в купе с высоким содержанием осколочных и трансураниевых радионуклидов (табл. 1 и табл. 2) однозначно приводит к выводу о необходимости кондиционирования ЛТСМ для обеспечения безопасности последующего захоронения.

Не исключена возможность внезапного (в течение короткого срока, исчисляемого несколькими неделями) разрушения материала лавы в результате концентрированного самооблучения с появлением пылеватых частиц. До настоящего времени нет единой точки зрения о характере долговременного (≈ 100 лет) поведения лавы.

Целью работы является обоснование технически приемлемого преобразования ЛТСМ в материал, устойчивый к воздействию как природных факторов, так и к излучению инкорпорированных радионуклидов, и пригодный для безопасного длительного хранения и последующего захоронения в геологическом хранилище.

Таблиця 1. Усредненный радионуклидный состав проб лавы из помещений ББ-2 (продукты деления и активации, данные по 15 пробам), пересчет на 26.04.1986 г [1].

Нуклид	¹⁴⁴ Ce	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	¹⁰⁶ Ru	¹²⁵ Sb	¹⁵⁴ Eu	¹⁵⁵ Eu	⁹⁰ Sr
Активность МБк/г	2,6·10 ³	5,6·10	3,1·10	3,7·10	7,5	4,0	4,2	1,0·10 ²

Таблиця 2. Усредненный радионуклидный состав проб лавы из помещений ББ-2 (уран и трансурановые элементы), пересчет на 26.04.1986 г [1].

Активность нуклидов, МБк/г					U, %
²³⁸ Pu	²³⁹ Pu + ²⁴⁰ Pu	²⁴² Cm	²⁴⁴ Cm	²⁴¹ Am	
8,4·10 ⁻¹	1,7	4,6·10	2,3·10 ⁻¹	4,6·10 ⁻¹	10

Результаты исследования и их обсуждение

В настоящее время основными матричными композициями для промышленной иммобилизации ВАО, содержащих как продукты деления, так и трансурановые радионуклиды, являются неорганические стекла. Выбор стекол обусловлен их свойствами - полимерной структурой и нестехиометрическим характером стекол, позволяющим включать в них в определенных пределах почти все элементы Периодической системы. Они характеризуются высокой стойкостью к коррозии в водных средах: природные силикатные стекла со дна океанов за миллион лет прокорродировали всего на десятую долю миллиметра [2].

Таблиця 3. Основные свойства боросиликатных стекол [3]

Параметр		Значение
Включение отходов (в виде окислов)		30 – 35%
Вязкость, Па·сек, при 1200°C		3,5 – 5,0
Сопротивление, Ω м при 1200°C		0,03 – 0,05
Сопротивление при сжатии, МПа		80 - 100
Скорость выщелачивания, г/см ² ·день	¹³⁷ Cs	10 ⁻⁵ – 10 ⁻⁶
	⁹⁰ Sr	10 ⁻⁶ – 10 ⁻⁷
	Cr, Mn, Fe, Co, Ni	10 ⁻⁷ – 10 ⁻⁸
	РЗЭ и актиниды	~ 10 ⁻⁸
	Na	10 ⁻⁵ – 10 ⁻⁶
	B	< 10 ⁻⁸

В предыдущих публикациях [3, 4] автор отмечал, что кондиционирование может быть выполнено путем преобразования ЛТСМ в боросиликатное стекло, обладающее малой восприимчивостью к действию радиации и низкой чувствительностью к изменениям химического состава иммобилизуемых материалов. В результате совместного переплавления ЛТСМ усредненного состава (табл. 4), соединений бора и натрия в массовом соотношении ЛТСМ – 100, В₂О₃ – 18, Na₂О – 8 возможно формирование стекол с составом (в таблице выделено курсивом), близким по основным компонентам SiO₂, Na₂O, В₂О₃ к боросиликатному стеклу **SON68**. Это стекло разработано во Франции для иммобилизации

высокоактивных отходов от переработки отработанного ядерного топлива, которые содержат не только продукты деления, но и заметное количество трансурановых элементов.

Таблица 4. Химический состав ЛТСМ и боросиликатного стекла SON68, мас. %

Оксид	Керамика из пом. 304/3 [5]		Керамика из пом. ББ-2 [5]		Коричневая керамика [1]		Черная керамика [1]		Стекло SON68, основной состав [6]
SiO ₂	65,2	51,7	66,9	53,1	58,5	46,4	63,2	50,2	45,28
CaO	6,2	4,9	4,8	3,8	6,1	4,8	6,6	5,2	4,02
ZrO ₂	5,4	4,3	5,1	4,0	6	4,8	5,7	4,5	2,72
Na ₂ O	5,7	10,9	2	7,9	4,9	10,2	5,5	10,7	10,1
BaO	0,1	<i>0,1</i>	0,1	<i>0,1</i>	0,2	<i>0,2</i>	0,2	<i>0,2</i>	0,61
Al ₂ O ₃	6,9	5,5	0	<i>0,0</i>	6,3	5,0	8,1	6,4	4,94
MnO	1,8	<i>1,4</i>	0,3	<i>0,2</i>	0,5	<i>0,4</i>	0,4	<i>0,3</i>	0,33
Fe ₂ O ₃	0,5	<i>0,4</i>	1,8	<i>1,4</i>	1,2	<i>1,0</i>	0	<i>0,0</i>	2,95
MgO	3,5	2,8	8,9	<i>7,1</i>	6,4	<i>5,1</i>	5,3	4,2	
UO ₂	4,7	<i>3,7</i>	10	<i>7,9</i>	10	<i>7,9</i>	5	<i>4,0</i>	
B ₂ O ₃	-	14,3	-	14,3	-	14,3	-	14,3	13,97

Наличие широкого спектра радионуклидов подразумевает различные источники облучения: альфа-распад изотопов плутония и минорных актинидов, бета-распад продуктов деления и сопровождающее эти процессы гамма-излучение. Вопросам устойчивости стекол в условиях самооблучения посвящено множество работ, выполненных в США, Японии и в Европе. Было показано, что альфа-распад минорных актинидов является главной причиной изменений механических свойств стекол (прочность, плотность) [7].

При этом отмечено, что для гомогенных боросиликатных стекол доза облучения, выше которой объем стекла остается практически постоянным, составляет около 10^{18} α -распад \cdot г $^{-1}$ (10^{11} рад). Максимальная степень изменения объема стекла под воздействием самооблучения находится в пределах $\pm 1,2$ % (рис. 1).

С целью количественной оценки воздействия самооблучения при альфа-распаде и обеспечения надежности прогнозов долгосрочного поведения стекла при геологическом захоронении во Франции были выполнены комплексные исследования свойств боросиликатного стекла SON68, легированного $^{244}\text{CmO}_2$. Включение в стекло короткоживущего актинида ($T_{1/2}^{244}\text{Cm} = 17,6$ лет) позволяет быстро накопить высокие дозы альфа-распада. Эта методология является наиболее представительной, поскольку весь объем стекла облучается с участием всех компонентов альфа-распада: ядер отдачи и альфа-частиц. Периодические исследования стекол с разной концентрацией $^{244}\text{CmO}_2$ в течение 8 лет позволили оценить эффекты доз альфа-распада, соответствующие примерно 100 000 лет захоронения стекол, содержащих реальные высокоактивные отходы переработки ядерного топлива.

Основные результаты исследований можно кратко сформулировать следующим образом:

- некоторые макроскопические свойства изменяются с накоплением альфа распадов, но затем стабилизируются после накопления дозы около $4 \cdot 10^{18}$ α -распад \cdot г $^{-1}$. Плотность стекла уменьшается примерно на 0,6%, модуль Юнга и твердость снижаются примерно на 15% и 30% соответственно, в то время как трещиностойкость увеличивается примерно на 50%;

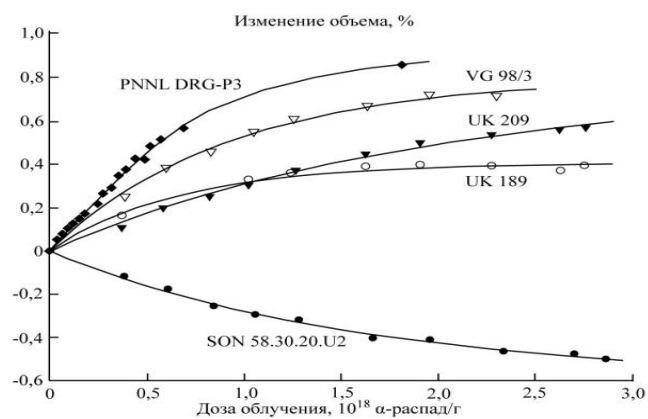


Рис. 1. Изменение объема боросиликатных стекел при α -облучении [8]

• скорость выщелачивания остается чрезвычайно низкой и изменяется в пределах $\approx 20\%$ вне зависимости от накопленной дозы вплоть до максимального значения $4 \cdot 10^{21}$ кэВ/см³ (рис. 2.);

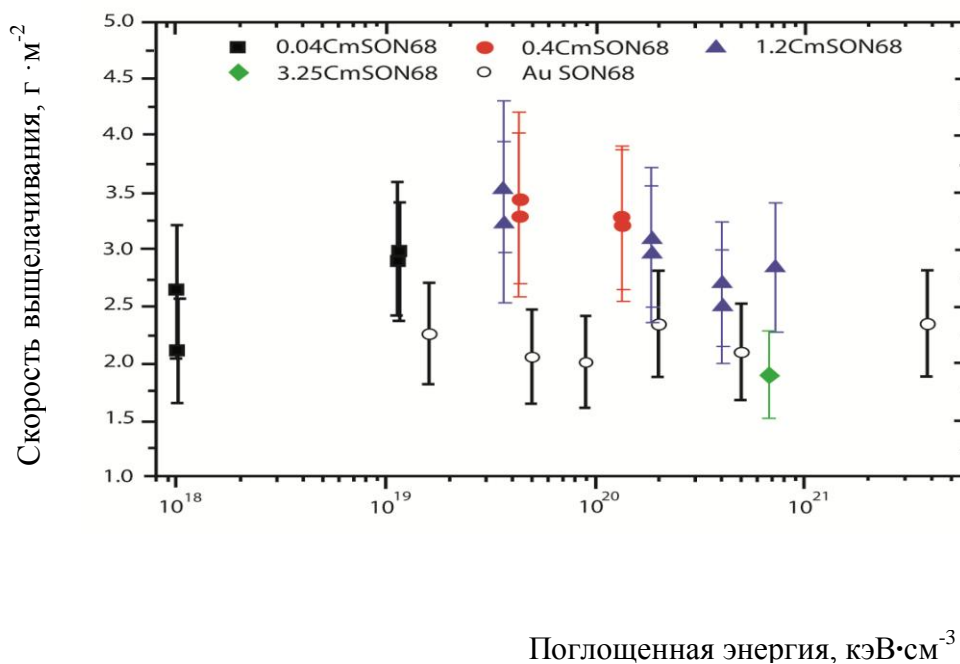


Рис. 2. Скорость выщелачивания из облученного стекла SON68 [9].

Цифры в названии стекла соответствуют весовому содержанию ²⁴⁴CmO₂. AuSON68 – стекло, облученное ионами Au.

• методами електронної мікроскопії встановлено, що боросилікатне скло впродовж до поглибленої дози $1,5 \cdot 10^{19}$ α-расп·г⁻¹ зберігає структурну однорідність при кімнатній температурі. Не відмічено утворення яких-либ нових фаз, мікротрещин і газових бульбашок;

• аналіз методом просвічуючої електронної мікроскопії підтвердив збереження однорідної мікроструктури після облучення дозою $8 \cdot 10^{18}$ α-расп·г⁻¹ [10]. При цьому межа просторового розрешення скла SON68 внаслідок альфа-распаду не викликають модифікацію мікроструктури скла в нанометровому масштабі;

• в раман-спектрах (спектроскопія комбінаційного розсіяння) стеклок, легированих кюриєм, з накопленням дози альфа-розпаду спостерігаються деякі зміни, але при цьому аналіз спектрів підтверджує, що ніяких вторинних фаз (ні кристалічна, ні аморфна) не утворюються при таких умовах облучення. Після дози $2 \cdot 10^{18}$ α -расп.г⁻¹ впродовж до значень $1,2 \cdot 10^{19}$ α -расп.г⁻¹ форми спектрів не змінюються, свідечують про стабілізацію нової структури в усьому об'ємі скла [11];

• поведінка гелія, виникаючого при альфа-розпаді, було вивчено в склі SON68 шляхом вимірювання константи розчинності і коефіцієнтів дифузії гелія. Константа розчинності атомів гелія, включених в вільний об'єм скла, варіює менше ніж на 10% навколо значення 10^{11} ат.см⁻³.Па⁻¹. Експерименти по вивченню дифузії гелія показують, що міграція гелія керується класичним термоактивованим дифузійним процесом і не передбачає наявності яких-небудь гелієвих «ловушок» в формі бульбашок нанометричних розмірів [12].

Властивості, притаманні боросилікатному склу SON68 дозволяють вважати його безпечною довготривалою стабільною матрицею, придатною для використання як захисний бар'єр при геологічному захороненні високорадіоактивних відходів – продуктів переробки ядерного палива. Модифікація складу лавових ТМ об'єкта «Укриття» шляхом введення бора і щелочей і формування боросилікатного скла, близького по складу до скла SON68 (табл. 4), дозволить розраховувати на отримання кінцевого продукту, здатного відповідати вимогам механічної, хімічної і радіаційної стійкості на період 100 і більше тисяч років.

Неважко розрахувати кількість альфа-розпадів, які стануться в 1 граммі ТМ за час 100000 років, виходячи з доступної інформації про вміст ділячихся нуклідів (табл. 2) і відомих співвідношень між активністю і масою ядерного матеріалу

$$m = (A \cdot M \cdot T_{1/2}) / (0,693 \cdot N_A),$$

де m – маса радіонукліда, г; A – активність радіонукліда, Бк; M – молярна маса, г/моль; $T_{1/2}$ – період напіврозпаду, сек; N_A – число Авогадро.

Ввиду великих періодів напіврозпаду атоми ²³⁸U і ²³⁵U не дають помітного внеску в загальну кількість альфа-розпадів, накопчених в ТМ за 100000 років.

Альфа-розпад ²³⁸Pu призводить до утворення ²³⁴U з періодом напіврозпаду $2,46 \cdot 10^5$ років. За шуканий період 100000 років розпадеться весь ²³⁸Pu і частина ²³⁴U, формуючи ланцюжок з семи альфа-розпадів, закінчуються стабільним ²⁰⁶Pb. Загальний внесок ²³⁸Pu в самооблучення ТМ становить $9,1 \cdot 10^{15}$ α -расп.г⁻¹.

Таблиця 5. Розрахунок кількості атомів ділячихся радіонуклідів в зразку ТМ з ББ-2

	U-238	U-235	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cm-242	Cm-244	Am-241
$T_{1/2}$, лет	4,47E+09	7,04E+08	87,7	2,41E+04	6560	0,446	17,6	432
M , г	238	235	238	239	240	242	244	241
A , Бк/г			8,40E+05	8,50E+05	8,50E+05	4,60E+07	2,30E+05	4,60E+05
маса, г/г	0,0888	0,0027	1,32E-06	3,70E-04	1,01E-04	3,75E-07	7,46E-08	3,62E-06
n , атом/г	2,25E+20	6,92E+18	3,35E+15	9,32E+17	2,54E+17	9,34E+14	1,84E+14	9,04E+15

Виконуючи консервативний розрахунок по всім трансурановим радіонуклідам з урахуванням відповідних ланцюжків розпаду, можна очікувати формування суммарної дози $1,2 \cdot 10^{18}$ α -расп.г⁻¹ ТМ за 100000 років. Приймаючи до уваги можливе розбавлення ТМ при змішуванні з менш активними різновидностями і додавання модифікаторів (сполучення бора

и натрия), максимальная суммарная доза облучения боросиликатного стекла, сформированного на основе ТСМ, не превысит $1 \cdot 10^{18}$ α -расп. $\cdot \text{г}^{-1}$ за 100000 лет.

Исходя из подобия химических составов боросиликатного стекла SON68 и предлагаемой боросиликатной матрицы для локализации лавовых ТСМ, можно предположить, что такая доза альфа-облучения не приведет к каким-либо изменениям механической, химической и радиационной стойкости за указанный период.

Такое преобразование ЛТСМ предотвратит их дальнейшую деструкцию вследствие развития трещин, которые, по всей видимости, являются результатом увеличения объема кристаллических включений за счет окисления оксида урана, и образования наноразмерных каналов, возникающих в результате накопления радиационных дефектов в ЛТСМ при их самооблучении [13].

Оптимальным методом получения боросиликатных стекол на основе ЛТСМ, по убеждению автора, является индукционное плавление в холодном тигле (ИПХТ)[3, 4]. По сравнению с другими плавителями, холодные тигли позволяют использовать более высокие температуры (до 3000 °С). За счет наличия в расплаве, находящемся в “холодном” тигле, местных зон перегрева и конвективного перемешивания достигается быстрое максимальное растворение оксида урана и его равномерное распределение в объеме стекломассы, чего не удастся достичь при использовании плавления в муфельной печи из-за седиментации урансодержащей фазы в донную часть стекломассы [14].

Высокая эффективность отверждения РАО методом ИПХТ подчеркивается во многих публикациях [2, 15]. Немаловажным аргументом в пользу ИПХТ является компактность тиглей. Диаметр тигля с производительностью около 40 кг/час составляет 800 мм (рис. 3), что допускает возможность размещения установки переработки ЛТСМ непосредственно в помещениях разрушенного энергоблока Чернобыльской АЭС. Принимая во внимание отсутствие в загружаемой в ИПХТ шихте соединений, при разложении которых образуются газообразные продукты, система вентиляции и очистки воздуха также не потребует больших помещений. Разлив боросиликатного стекла целесообразно выполнять в такие же контейнеры из нержавеющей стали, которые предусматриваются в проекте хранилища для возвращаемых из РФ остеклованных высокоактивных отходов от переработки отработанного ядерного топлива АЭС Украины. Это позволило бы унифицировать технические решения по транспортировке и хранению остеклованных отходов различного происхождения.

Каждый макроэлемент, входящий в состав ЛТСМ, будет оказывать соответствующее влияние на химическую устойчивость стекла, его вязкость, электропроводность и другие свойства. Увеличенные по сравнению со стеклом SON68 содержания Si, U, Zr, Mg и Al (табл.4) повысят устойчивость стекла к выщелачиванию, но также приведут к повышению вязкости расплава и температуры его варки.

Безусловно, необходимо выполнение комплекса исследований с тем, чтобы уточнить оптимальные соотношения лавовых ТСМ с присущими им вариациями химического состава и бор-натрий-содержащих компонентов для получения гомогенной боросиликатной матрицы с высокой гидролитической устойчивостью. Помимо указанного критерия, важным технологическим параметром, определяющим температуру получения стекольного расплава, является его вязкость.

Для решения этой задачи, при планировании эксперимента, целесообразно использовать метод факторного анализа, позволяющего определить влияние выбранных факторов на интересующие нас свойства конечного продукта путем одновременного варьирования концентрации основных компонентов при минимальном количестве постановочных опытов.

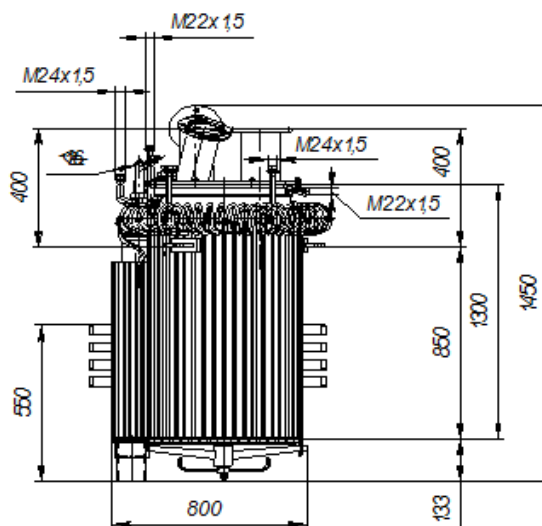


Рис. 3. Габаритные размеры и характеристики холодного тигля, предназначенного для плавления стеклоподобных компонентов и разлива в приемную тару
основной материал – сталь 12X18H10T4; масса – 380 кг; расход охлаждающей воды 10 м³/час

Таким образом, рассмотренные выше свойства боросиликатных стекол, включающих делящиеся радионуклиды, убедительно свидетельствуют в пользу выполнения неотложных научно-исследовательских работ по выбору оптимальной технологии локализации лавовых ТСМ объекта «Укрытие» в боросиликатную матрицу.

Выводы

1. В лавовых топливосодержащих массах, сосредоточенных в объекте «Укрытие», вследствие накопления радиационных дефектов при самооблучении ЛТСМ за счет α -распада трансурановых элементов, идут процессы деструкции. До настоящего времени нет единой точки зрения о характере долговременного (≈ 100 лет) поведения ЛТСМ.
2. Выполненные за рубежом исследования боросиликатных стекол, инкорпорированных короткоживущим нуклидом ^{244}Cm , показали высокую устойчивость этих матриц к воздействию альфа-облучения. Вплоть до дозы $1,2 \cdot 10^{19}$ α -расп. $\cdot \text{г}^{-1}$ стекла сохраняют однородность, образования каких-либо новых фаз, микротрещин и газовых пузырьков не отмечено.
3. Оптимальным методом получения боросиликатных стекол на основе ЛТСМ, близких по составу основных компонентов к стеклам SON68, является индукционное плавление в холодном тигле с формированием шихты в массовом соотношении ЛТСМ – 100, V_2O_3 – 18, Na_2O – 8. Компактные размеры тигля и системы вентиляции позволяют рассматривать возможность размещения установки кондиционирования непосредственно в помещениях объекта «Укрытие».
4. Требуется неотложное проведение научно-исследовательских работ для определения оптимальных соотношений компонентов стекла с тем, чтобы получаемая матрица обладала гомогенностью и высокой гидролитической устойчивостью, приемлемой для передачи на захоронение.
5. Разлив боросиликатного стекла, сформированного с применением индукционного плавления в холодном тигле, может выполняться в металлические бочки, предусмотренные в проекте хранилища для возвращаемых из РФ остеклованных высокоактивных отходов от переработки отработанного ядерного топлива АЭС Украины. Это позволило бы унифицировать технические решения по транспортировке и хранению остеклованных отходов различного происхождения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ядерное топливо в объекте «Укрытие» Чернобыльской АЭС / Р. В. Арутюнян, Л. А. Большой, А. А. Боровой, Е. П. Велихов, А. А. Ключников. — М. : Наука, 2010. — 240 с.
2. Ожован М. И. Применение стекол при иммобилизации радиоактивных отходов / Ожован М. И., Полуэктов П. П. // Безопасность окружающей среды. — 2010. — № 1. — С. 112—119.
3. Olkhovyk Yu. Corrosion Resistance of Chernobyl NPP Lava Fuel-Containing Masses / Yu.Olkhovyk, M. Ojovan// Innovations in Corrosion and Materials Science. — 2015. — No.5. (1) - p. 36 – 42.
4. Ольховик Ю.А. О кондиционировании лавовых топливо-содержащих масс объекта «Укрытие»// Ядерная энергетика та довкілля. — 2014. — №2(4). — с.52–55.
5. Отчет о состоянии безопасности объекта «Укрытие». — Т. 1. [Электронный ресурс]. — Режим доступа: http://www.chnpp.gov.ua/index.php?option=com_content&view=article&id=157&lang=ru
6. Peugeot S. Irradiation stability of R7T7-type borosilicate glass / S. Peugeot, J.N. Cachia, C. Jegou, X. Deschanel, D. Roudil, V. Broudic, J.M. Delays, J.M. Bart // Journal of Nuclear Materials. — 2006. — 354. — p. 1–13.
7. Weber W.J. Radiation effects in glasses used for immobilization of high-level waste and plutonium disposition / W.J. Weber, R.C. Ewing, C.A. Angell, G.W. Arnold, A.N. Cormack, J.M. Delays, D.L. Gscom, L.W. Hobbs, A. Navrotsky, D.L. Price, A.M. Stoneham, M.C. Weinberg // Journal of Material Society. — 1997. —V.12. — p. 1946–1978.
8. Ewing R. C. Actinide waste forms and radiation effects / Ewing R. C., Weber W. J. // Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements. — 2011. — V. 6. —P. 3813—3887.
9. Peugeot S. Effect of alpha radiation on the leaching behaviour of nuclear glass /S.Peugeot, V. Broudic, C. Jegou, P. Frugier, D. Roudil, X. Deschanel, H. Rabiller, P.Y. Noel // Journal of Nuclear Materials .— 2007. — 362. —p. 474–479.
10. Peugeot S. Specific outcomes of the research on the radiation stability of the French nuclear glass towards alpha decay accumulation / S. Peugeot, J.-M. Delays, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials. — 2014. — 444. —p. 76–91.
11. Peugeot S. Irradiation Stability of R7T7-Type Borosilicate Glass / S. Peugeot, J.M. Delays, G. Bureau, R. Do Quang, S. Betremieux, C. Jegou, F.Chamssedine, T. Sauvage, T. Fares, G. Calas, G. Henderson, X. Deschanel // "Global – 2009.The Nuclear Fuel Cycle: Sustainable Options & Industrial Perspectives". - Paris, 2009.
12. Fares T. Helium diffusion in curium-doped borosilicate waste glass / T. Fares, S. Peugeot, O. Bouty, X. Deschanel, M. Magnin, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials. — 2011. -416. — p. 236–241.
13. Габелков С. В. Наноразмерные поровые каналы как составляющая порового пространства лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие» /С. В. Габелков, А. А. Ключников, Е. Е. Олейник, П. Е. Пархомчук, Г. Ф. Чемерский, В. Н. Щербин// Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2014. — 22. — с. 70 – 73.
14. Матюнин Ю.И. Исследование урансодержащих боросиликатных стекол, синтезированных в индукционном плавителе с холодным тиглем (ИПХТ)// Ю.И. Матюнин, С.В. Юдинцев. — Вопросы радиационной безопасности. — 2000. — №1. — с. 15– 23.
15. Ojovan M. I. Glassy wastefoms for nuclear waste immobilization / Ojovan M. I., Lee W. E. // Metallurgical and Materials Transactions A. — 2011. — v. 42A. — P. 837—851.

REFERENCES

1. R. Arutunian, L. Bolshov, A. Borovoy, E. Velikhov and A. Klyuchnikov Yadernoje toplivo v ob'ekte «Ukryitie» Chernobyil'skoy AES [Nuclear fuel in the object "Shelter" of Chernobul NPP] // Moscow: Nauka 2010, pp. 240. [in Russian]
2. M. Ozhovan, P. Polouektov Primenenie stekol pri immobilizatsii radioaktivnyih othodov // Bezopasnost okruzhayushey sredy [Application glass immobilization of radioactive waste // Safety environment] — 2010. — № 1. — P. 112—119. [in Russian]
3. Yu. Olkhovyk Corrosion Resistance of Chernobyl NPP Lava Fuel-Containing Masses / Yu.Olkhovyk, M. Ojovan // Innovations in Corrosion and Materials Science. — 2015. — No.5. (1) - p. 36 – 42.
4. Yu. Olkhovik O konditsionirovanii lavovyih toplivo-soderzhaschih mass ob'ekta «Ukryitie»// Yaderna energetika ta dovkiillya. [About conditioning lava fuel-containing masses of the "Shelter" // Nuclear Energetics and Environment]. — 2014. — №2(4). — p.52–55. [in Russian]

5. Report on safety status of object "Shelter". Vol.1.
http://www.chnpp.gov.ua/index.php?option=com_content&view=article&id=157&lang=ru
6. S. Peugeot [Irradiation stability of R7T7-type borosilicate glass](#) / S. Peugeot, J.N. Cachia, C. Jegou, X. Deschanel, D. Roudil, V. Broudic, J.M. Delaye, J.M. Bart // Journal of Nuclear Materials. – 2006. – 354. – p. 1–13.
7. W. Weber Radiation effects in glasses used for immobilization of high-level waste and plutonium disposition / W.J. Weber, R.C. Ewing, C.A. Angell, G.W. Arnold, A.N. Cormack, J.M. Delaye, D.L. Gscom, L.W. Hobbs, A. Navrotsky, D.L. Price, A.M. Stoneham, M.C. Weinberg // Journal of Material Society. – 1997. –V.12. – p. 1946–1978.
8. R. Ewing Actinide waste forms and radiation effects / Ewing R. C., Weber W. J. // Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements. — 2011. — V. 6. —P. 3813—3887.
9. S. Peugeot Effect of alpha radiation on the leaching behaviour of nuclear glass /S.Peugeot, V. Broudic, C. Jegou, P. Frugier, D. Roudil, X. Deschanel, H. Rabiller, P.Y. Noel // Journal of Nuclear Materials .– 2007. – 362. –p. 474–479.
10. S. Peugeot Specific outcomes of the research on the radiation stability of the French nuclear glass towards alpha decay accumulation / S. Peugeot, J.-M. Delaye, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials. – 2014. – 444. –p. 76–91.
11. S. Peugeot Irradiation Stability of R7T7-Type Borosilicate Glass / S. Peugeot, J.M. Delaye, G. Bureau, R. Do Quang, S. Betremieux, C. Jegou, F.Chamssedine, T. Sauvage, T. Fares, G. Calas, G. Henderson, X. Deschanel // "Global – 2009.The Nuclear Fuel Cycle: Sustainable Options & Industrial Perspectives". - Paris, 2009.
12. T. Fares [Helium diffusion in curium-doped borosilicate waste glass](#) / T. Fares, S. Peugeot, O. Bouty, X. Deschanel, M. Magnin, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials. – 2011. –416. – p. 236–241.
13. S. Gabelkov [Nanosized pore channels as a component of pore space of lava-like fuel-containing materials of «Ukrytya» object // Problemi bezpeki atomnih elektrostantsIy I Chornobilya]/ S. V. Gabelkov, O. O. Kliuchnykov, Ye. Ye. Oliylyk, P. E. Parkhomchuk, G. F. Chemersky, V. M. Shcherbin // Safety problems of nuclear power plants and Chernobyl. - 2014 - #22 - p. 70 - 73.
[in Russian]
14. Y. Matyunin Issledovanie uransoderzhaschih borosilikatnyih stekol, sintezirovannyih v induktsionnom plavitele s holodnyim tiglem. [Immobilization of U₃O₈ in borosilicate glass in an induction melter with a cold crucible] / Y. I. Matyunin and S. V. Yudinsev // At.Energy. – 1998. -Vol. 84. - pp. 173-178. [In Russian]
15. M. Ojovan Glassy wastefoms for nuclear waste immobilization / Ojovan M. I., Lee W. E. // Metallurgical and Materials Transactions A. — 2011. — v. 42A. — P. 837—851.

ЛОКАЛІЗАЦІЯ ПАЛИВОВМІСНИХ МАС ОБ'ЄКТУ «УКРИТТЯ» У БОРОСИЛІКАТНОМУ СКЛІ

Ольховик Ю. О. кандидат геол. - мін. наук, с. н. с, ДУ «Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України», yolkhovyk@ukr.net

*У роботі розглянута поточна ситуація в об'єкті «Укриття», яка характеризується інтенсивними процесами руйнування лавових паливовмісних мас внаслідок альфа-розпаду ізотопів плутонію і мінорних актинидов. Виконаний у Франції комплекс досліджень властивостей боросилікатного скла, легованого короткоживущим ²⁴⁴СmO₂, показав високу стійкість цієї матриці до впливу альфа-розпаду *in situ*. Навіть при отриманні дози $1,2 \cdot 10^{19}$ α -розп. $\cdot \text{г}^{-1}$ скло зберігає однорідність, утворення будь-яких нових фаз, мікротріщин і газових бульбашок не відзначено. Розглянуто можливість перетворення лавових паливовмісних мас у боросилікатне скло, близьке за складом до дослідженого скла SON68, з використанням індукційного плавлення в «холодному» тиглі. Накопичена доза в склі, сформованому на основі лавових паливовмісних мас, не перевищує $1 \cdot 10^{18}$ α -розп. $\cdot \text{г}^{-1}$ за 100000 років.*

Ключові слова: лавові паливовмісні маси, захоронення, оскловування, боросилікатне скло, самопромінення, альфа-розпад

LOCALIZATION OF «SHELTER» LAVA FUEL-CONTAINING MASSES IN BOROSILICATE GLASSES

Yu. Ol'khovyk Ph.D(Geol.-Min.), Senior Researcher, SI «Institute of Enviromental Geochemistry NAS Ukraine»,
yolkhovyk@ukr.net

The current situation of the "Shelter" object, which is characterized by intense processes of lava fuel-containing masses destruction as a result of the alpha decay of plutonium and minor actinide isotopes, is considered. Made in France, the complex study of the properties of borosilicate glass, doped by short-lived $^{244}\text{CmO}_2$, showed a high resistance of the matrix to the effects of alpha-decay in situ. Up to a dose of $1,2 \cdot 10^{19} \cdot \alpha \cdot \text{g}^{-1}$ glass retains uniformity, the formation of any new phases, cracks and gas bubbles was not observed. The possibility of conversion of fuel containing lava masses in borosilicate glass, which is close in composition to the studied glasses SON68, using induction melting in the "cold" crucible is discussed. The cumulative dose in the glass, formed by the lava fuel-containing masses, does not exceed $1 \cdot 10^{18} \alpha \cdot \text{g}^{-1}$ for 100 000 years.

Keywords: *lava fuel-containing masses, disposal, vitrification, borosilicate glass, self-irradiation, alpha decay*